

PCT/JP 2004/017875

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

03.12.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 4 年 1 0 月 2 9 日
Date of Application:

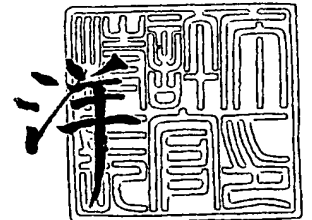
出 願 番 号 特 願 2 0 0 4 - 3 1 6 7 6 0
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 4 - 3 1 6 7 6 0]

出 願 人 花 王 株 式 有 限 公 司
Applicant(s):

2 0 0 5 年 1 月 2 1 日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

出 証 番 号 出 証 特 2 0 0 4 - 3 1 2 3 3 4 8

【書類名】 特許願
【整理番号】 P05601610
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 A23F 3/14
A23L 1/30
A23L 2/52

【発明者】
【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2-1-3 花王株式会社研究所内
【氏名】 杉山 征輝

【発明者】
【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2-1-3 花王株式会社研究所内
【氏名】 斉藤 淳

【発明者】
【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2-1-3 花王株式会社研究所内
【氏名】 清水 雅美

【発明者】
【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2-1-3 花王株式会社研究所内
【氏名】 小倉 義和

【特許出願人】
【識別番号】 000000918
【氏名又は名称】 花王株式会社

【代理人】
【識別番号】 110000084
【氏名又は名称】 特許業務法人アルガ特許事務所
【代表者】 中嶋 俊夫

【選任した代理人】
【識別番号】 100068700
【弁理士】
【氏名又は名称】 有賀 三幸

【選任した代理人】
【識別番号】 100077562
【弁理士】
【氏名又は名称】 高野 登志雄

【選任した代理人】
【識別番号】 100096736
【弁理士】
【氏名又は名称】 中嶋 俊夫
【電話番号】 03-3669-0904
【連絡先】 担当

【選任した代理人】
【識別番号】 100117156
【弁理士】
【氏名又は名称】 村田 正樹

【選任した代理人】
【識別番号】 100111028
【弁理士】
【氏名又は名称】 山本 博人

【選任した代理人】
【識別番号】 100101317
【弁理士】
【氏名又は名称】 的場 ひろみ
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 164232
【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 要約書 1

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

有機溶媒と水の混合重量比が $91/9 \sim 97/3$ の混合溶液に、酸性白土又は活性白土を分散させた分散液と、緑茶抽出物とを接触させる精製緑茶抽出物の製造方法であって、該分散液と緑茶抽出物を接触させたときの pH を $4 \sim 6$ に調整する工程を含む精製緑茶抽出物の製造方法

。

【請求項 2】

酸性白土を、非重合体カテキン類との重量比率（酸性白土／非重合体カテキン類）が $0.9 \sim 5.0$ となる範囲で用いる請求項 1 記載の製造方法。

【請求項 3】

更に、有機酸を、非重合体カテキン類との重量比率（有機酸／非重合体カテキン類）が $0.02 \sim 0.20$ となる範囲で用いる請求項 1 又は 2 記載の製造方法。

【請求項 4】

前記分散液に $10 \sim 30^\circ\text{C}$ で緑茶抽出物を接触させた後に、 $40 \sim 60^\circ\text{C}$ に昇温する請求項 1～3 のいずれか 1 項記載の製造方法。

【請求項 5】

有機溶媒が、エタノールである請求項 1～4 のいずれか 1 項記載の製造方法。

【請求項 6】

前記分散液と緑茶抽出物とを接触させた後、更に活性炭と接触させる請求項 1～5 のいずれか 1 項記載の製造法。

【請求項 7】

請求項 1～6 のいずれか 1 項記載の製造方法で製造された精製緑茶抽出物であって、固形分中に非重合体カテキン類を $40 \sim 90$ 重量%含有し、非重合体カテキン類／カフェイン重量比率が $25 \sim 200$ 、非重合体カテキン類／（遊離アミノ酸＋タンパク質）重量比率が $15 \sim 25$ である精製緑茶抽出物。

【請求項 8】

請求項 7 記載の精製緑茶抽出物を配合した容器詰飲料。

【書類名】明細書

【発明の名称】精製緑茶抽出物の製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、緑茶抽出物から非重合体カテキン類を高濃度に含有する精製緑茶抽出物を製造する方法に関する。

【背景技術】

【0002】

緑茶又は半発酵、発酵茶葉から安定した風味を有するカテキン類の抽出方法として、低温水で抽出を行い、昇温して再度抽出する2段抽出法や、強酸性下での抽出方法が知られている（特許文献1～3）。しかしながら、これらの抽出方法は、茶葉からのカテキン抽出に限定されたものであり、精製物の風味の安定化、良好な風味の維持のみを目的としたものであった。

また、カテキン類は一般に有機溶媒に難溶性であることが知られており、弱酸性域において抽出を促進できることが知られている。しかし、有機溶媒の割合が高くなるとカテキン類の抽出効率が著しく低下する等の問題があった（特許文献4）。

【特許文献1】特開2003-219799号

【特許文献2】特開2003-219800号

【特許文献3】特開2003-225053号

【特許文献4】特開2004-147508号

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

本発明の目的は、緑茶抽出物中の非重合体カテキン類組成を著しく変化させることなく、非重合体カテキン類を効率良く抽出する方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0004】

本発明は、緑茶抽出物を、酸性白土又は活性白土と特定の割合の水と有機溶媒の混合溶液との分散液に接触させ、当該接触時のpHを特定の範囲とすることにより、効率良く非重合体カテキン類を抽出でき、カフェインが低減し、色相もよく安定性も良好な精製緑茶抽出物が得られることを見出した。

【0005】

本発明は、有機溶媒と水の混合重量比が91/9～97/3の混合溶液に、酸性白土又は活性白土を分散させた分散液と、緑茶抽出物とを接触させる精製緑茶抽出物の製造方法であって、該分散液と緑茶抽出物を接触させたときのpHを4～6に調整する工程を含む精製緑茶抽出物の製造方法を提供するものである。

また、本発明は、上記製造方法で製造した固形分中に非重合体カテキン類を40～90重量%含有し、非重合体カテキン類/カフェイン重量比が25～200、非重合体カテキン類/（遊離アミノ酸+タンパク質）重量比が15～25である精製緑茶抽出物及びそれを配合した容器詰飲料を提供するものである。

【発明の効果】

【0006】

本発明によれば、緑茶抽出物中の非重合体カテキン類の組成を変化させることなく、非重合体カテキン類を効率良く抽出することができる。また、カフェインが低減し、色相もよく、安定性の良好な精製緑茶抽出物を製造できる。この方法は、高濃度有機溶媒下での精製緑茶抽出物の製造法に有用である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0007】

本発明で用いる緑茶抽出物は、非重合体カテキン類を1種以上含有するものである。非重合体カテキン類とは、カテキン、ガロカテキン、カテキンガレート、ガロカテキンガレ

ート等の非エピ体カテキン類及びエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート、エピガロカテキンガレート等のエピ体カテキン類をあわせての総称である。

【0008】

このような非重合体カテキン類を含有する緑茶抽出物としては、緑茶の茶葉から得られた抽出液を乾燥又は濃縮したもの等が挙げられる。

【0009】

ここで使用する茶葉は、より具体的には、Camellia属、例えばC. sinensis、C. assamica及びやぶきた種又はそれらの雑種等から得られる茶葉から製茶された茶葉が挙げられる。製茶された茶葉には、煎茶、番茶、玉露、てん茶、釜炒り茶等の緑茶類がある。

茶葉から緑茶抽出物を得る為の抽出方法は、攪拌抽出等の方法により行うことができる。抽出の際、水にあらかじめアスコルビン酸ナトリウム等の有機酸又は有機酸塩類を添加してもよい。また、煮沸脱気や窒素ガス等の不活性ガスを通気して溶存酸素を除去しつつ、いわゆる非酸化的雰囲気下で抽出する方法を併用してもよい。この得られた抽出液を乾燥し、本発明に使用する緑茶抽出物を得る。緑茶抽出物の形態としては、液体、スラリー、半固体、固体の状態が挙げられる。エタノール中での分散性の観点から、スラリー、半固体、固体の状態が好ましい。

【0010】

本発明に使用する緑茶抽出物には茶葉から抽出した抽出液を乾燥して使用する代わりに、茶抽出物の濃縮物を用いても、茶葉からの抽出液の乾燥物と茶抽出物の濃縮物とを併用してもよい。

ここで、茶抽出物の濃縮物とは、茶葉から熱水又は水溶性有機溶媒により抽出された抽出物を濃縮したものであり、例えば、特開昭59-219384号公報、特開平4-20589号公報、特開平5-260907号公報、特開平5-306279号公報等に記載されている方法により調製したものをいう。具体的には、緑茶抽出物として、市販の東京フードテクノ社製「ポリフェノン」、伊藤園社製「テアフラン」、太陽化学社製「サンフェノン」等の粗カテキン製剤を用いることもできる。

【0011】

本発明で使用する緑茶抽出物としては、乾燥重量で、非重合体カテキン類を25～90重量%、更に25～70重量%、更にまた25～40重量%含有する茶抽出物の濃縮物を用いるのが、非重合体カテキン類以外の呈味成分が残っているために好ましい。

【0012】

本発明で用いる有機溶媒としては、メタノール、エタノール、アセトン、酢酸エチル等が挙げられる。これらのうち、メタノール、エタノール、アセトンの親水性有機溶媒が好ましく、特に食品への使用を考慮すると、エタノールが好ましい。

【0013】

本発明においては、有機溶媒と水の重量比を91/9～97/3、好ましくは91/9～95/5、より好ましくは92/8～95/5の範囲に調整する。91/9未満では、緑茶抽出物の精製度合いが落ち、好ましくない。

【0014】

本発明においては、有機溶媒と水の混合溶液100重量部に対して、緑茶抽出物（乾燥重量換算）を10～40重量部、特に10～30重量部添加して処理するのが、緑茶抽出物を効率良く処理できるので好ましい。

【0015】

本発明で用いる酸性白土又は活性白土は、化学成分として、SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃、CaO、MgO等を含有するものであるが、SiO₂/Al₂O₃比が3～12、特に4～9であるのが好ましい。また、Fe₂O₃を2～5重量%、CaOを0～1.5重量%、MgOを1～7重量%含有する組成のものが好ましい。活性白土は、天然に産出する酸性白土（モンモリロナイト系粘土）を硫酸等の鉱酸で処理したものであり、大きい比表面積と吸着能を有する多孔質構造をもった化合物である。酸性白土を更に、酸処理するこ

とにより比表面積が変化し、脱色能の改良及び物性が変化することができる。

【0016】

酸性白土又は活性白土の比表面積は、酸処理の程度等により異なるが、 $50 \sim 350 \text{ m}^2/\text{g}$ であるのが好ましく、 pH (5重量%サスペンション) は $2.5 \sim 8$ 、特に $3.6 \sim 7$ のものが好ましい。例えば、酸性白土としては、ミズカエース#600 (水澤化学社製) 等の市販品を用いることができる。

【0017】

本発明において、緑茶抽出物を、酸性白土又は活性白土と有機溶媒-水混合溶液との分散液に、先ず接触混合するのが好ましく、酸性白土又は活性白土と緑茶抽出物との混合重量比率は、酸性白土又は活性白土/非重合体カテキン類の値が $0.9 \sim 5.0$ 、更に $1.5 \sim 3.0$ であるのが好ましい。酸性白土又は活性白土の添加量が少なすぎるとカフェイン除去効率が悪くなり、また多すぎるとろ過工程におけるケーキ抵抗が大きくなり好ましくない。

【0018】

また、緑茶抽出物と前記分散液との接触は pH を $4 \sim 6$ の範囲に調整して行うことが、非重合体カテキン類を効率よく抽出した精製緑茶抽出物を得るために必要である。接触の際、クエン酸、乳酸、酒石酸、コハク酸、リンゴ酸等の有機酸を、有機酸と非重合体カテキン類の重量比率 (有機酸/非重合体カテキン類) が $0.02 \sim 0.20$ の範囲で添加すると好ましい。

【0019】

さらに、前記分散液に緑茶抽出物を接触させた液の温度は、始めに $10 \sim 30^\circ\text{C}$ とし、その後 $40 \sim 60^\circ\text{C}$ に昇温すると、緑茶抽出物の溶解が促進されるという点及び分散液へのカテキン抽出効率が促進されるという点で好ましい。

【0020】

本発明においては、更に前記分散液に緑茶抽出物を接触させた後、更に活性炭と接触させるのが好ましい。好ましくは、緑茶抽出物と前記分散液とを先ず接触混合処理し、次いでろ過し、ろ液部分を活性炭と接触処理するのがよい。

【0021】

活性炭としては、一般に工業レベルで使用されているものであれば特に制限されず、例えば、ZN-50 (北越炭素社製)、クラレコールGLC、クラレコールPK-D、クラレコールPW-D (クラレケミカル社製)、白鷺AW50、白鷺A、白鷺M、白鷺C (武田薬品工業社製) 等の市販品を用いることができる。活性炭の細孔容積は $0.01 \sim 0.8 \text{ mL/g}$ が好ましく、特に $0.1 \sim 0.7 \text{ mL/g}$ が好ましい。また、比表面積は $800 \sim 1300 \text{ m}^2/\text{g}$ 、特に $900 \sim 1200 \text{ m}^2/\text{g}$ の範囲のものが好ましい。なお、これらの物性値は窒素吸着法に基づく値である。

【0022】

活性炭は、有機溶媒と水の混合溶液100重量部に対して $0.5 \sim 5$ 重量部、特に $0.5 \sim 3$ 重量部添加するのが好ましい。活性炭の添加量が少なすぎると、カフェイン除去効率が悪くなる。

【0023】

また、活性炭と、酸性白土又は活性白土は、重量比率 (酸性白土又は活性白土/活性炭) が $1 \sim 10$ 、更に $1 \sim 6$ であるのが好ましい。

【0024】

緑茶抽出物と前記分散液との接触処理は、バッチ式等の方法で行うことがよい。また、緑茶抽出物と活性炭との接触方法は、活性炭カラムによる連続処理等の方法で行うことがよい。一般には、粉末状の活性炭等を添加、攪拌し、カフェインを選択的に吸着後、ろ過操作によりカフェインを除去したろ液を得る方法又は顆粒状の活性炭等を充填したカラムを用いて連続処理によりカフェインを選択的に吸着する方法等が採用される。

酸性白土又は活性白土と接触させ、必要に応じて更に活性炭と接触させた後の緑茶抽出物の混合溶液は、混合溶液から有機溶媒が、例えば減圧蒸留等の方法を用いて留去される

。また処理後の緑茶抽出物は液状でも固体状でもいずれでもよいが、固体状態を調製する場合には凍結乾燥やスプレードライ等の方法によって粉末化してもよい。

【0025】

本発明により得られる精製緑茶抽出物は、含有する非重合体カテキン類の組成が処理前とでは著しく変化させることはなく、本質的に変化していないのが好ましい。処理前後の有機溶媒と水の混合溶液中の非重合体カテキン類の収率は60重量%以上が好ましく、特に65重量%以上が好ましい。

【0026】

また、本発明により得られる精製緑茶抽出物中の非重合体カテキン類は、エピガロカテキンガレート、ガロカテキンガレート、エピガロカテキン及びガロカテキンからなるガロ体と、エピカテキンガレート、カテキンガレート、エピカテキン及びカテキンからなる非ガロ体の比率が、天然の緑茶葉の組成を維持しているのが好ましい。

【0027】

また、本発明により得られる精製緑茶抽出物中のカテキンガレート、エピカテキンガレート、ガロカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなるガレート体の全非重合体カテキン類中での割合は、45重量%以上であるのが、非重合体カテキン類の生理効果の有効性上好ましい。

【0028】

本発明による処理によって得られる精製緑茶抽出物中のカフェイン濃度は、非重合体カテキン類に対して、非重合体カテキン類／カフェイン（重量比率）が25～200、更に30～150、特に30～100であるのが好ましい。

【0029】

本発明によって得られる精製緑茶抽出物は、非重合体カテキン類を25～90重量%、更に25～70重量%、更にまた40～70重量%含有するのが好ましい。また、精製緑茶抽出物の固形分中で、非重合体カテキン類を40～90重量%、更に50～90重量%、更にまた60～90重量%含有するのが好ましい。更に、精製緑茶抽出物の固形分中で、遊離アミノ酸とタンパク質を合計量で0～5.0重量%含有するのが好ましく、非重合体カテキン類と遊離アミノ酸及びタンパク質の合計量との重量比率（非重合体カテキン類／（遊離アミノ酸＋タンパク質））が15～25であるのが好ましい。

【0030】

得られた精製緑茶抽出物は、カフェイン濃度が低いにもかかわらず、高い非重合体カテキン類濃度を維持しており、かつ色相がよく、更に緑茶の風味がほとんどない。従って、精製緑茶抽出物を配合した容器詰飲料は、特にスポーツ飲料、アイソトニック飲料等の非茶系飲料として有用である。

【0031】

本発明の容器詰飲料中には、水に溶解状態にある（A）非重合体カテキン類を、好ましくは0.03～1.0重量%含有し、より好ましくは0.04～0.5重量%、さらに好ましくは0.06～0.4重量%、更に好ましくは0.07～0.4重量%、特に好ましくは0.08～0.3重量%、殊更好ましくは0.09～0.3重量%、もっとも好ましくは、0.1～0.3重量%含有する。非重合体カテキン類含量がこの範囲にあると、多量の非重合体カテキン類を容易に取り易く、飲料調製直後の色調の点からも好ましい。当該非重合体カテキン類の濃度は、緑茶抽出物の配合量によって調整することができる。

【0032】

本発明の容器詰飲料における非重合体カテキン類とカフェインとの含有重量比率（非重合体カテキン類／カフェイン）は、25～200、更に30～150、特に30～100が好ましい。

【0033】

本発明の容器詰飲料には、ナトリウムイオン及び／又はカリウムイオンを含有させてもよい。これらのイオンを含有させた本発明飲料は、スポーツドリンク、アイソトニック飲料等の飲料形態として有用である。スポーツドリンクとは、身体運動後に汗として失われ

る水分、ミネラルを速やかに補給できる飲料であると一般的に規定される。

【0034】

主な生理電解質の中にはナトリウム及びカリウムがある。これらのイオン成分はそれらに対応する水溶性成分ないし、無機塩を添加することで含有させることができる。それらは果汁及び茶抽出物中にも存在する。本発明飲料中における電解質又はイオン成分の量は最終の飲用しうる容器詰飲料中の含有量である。電解質濃度はイオン濃度で示される。カリウムイオン成分は、カリウム塩化物、炭酸カリウム、硫酸カリウム、酢酸カリウム、炭酸水素カリウム、クエン酸カリウム、リン酸カリウム、リン酸水素カリウム、酒石酸カリウム、ソルビン酸カリウム等又はそれらの混合物のような塩として、あるいは加えられた果汁又は茶の成分として本発明飲料に配合できる。カリウムイオンは、0.001~0.12重量%、好ましくは0.002~0.15重量%、最も好ましくは0.003~0.12重量%本発明の容器詰飲料中に含有することが好ましい。同様に、ナトリウムイオン成分は、ナトリウム塩化物、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、クエン酸ナトリウム、リン酸ナトリウム、リン酸水素ナトリウム、酒石酸ナトリウム、安息香酸ナトリウム等及びそれらの混合物のような容易に入手しうるナトリウム塩として、あるいは加えられた果汁又は茶の成分として配合できる。ナトリウム濃度は浸透圧による水の吸収を容易にさせる上で低い方が望ましいが、体から腸に水を浸透圧吸引しない程度であることが、好ましい。これを行うために必要なナトリウムの濃度は、血漿ナトリウムの場合よりも低いことが好ましい。ナトリウムイオンは、0.001~0.5重量%、好ましくは0.002~0.4重量%、更に好ましくは0.003~0.2重量%本発明の容器詰飲料中に含有するのが好ましい。カリウム及びナトリウムイオンに加えて、本発明容器詰飲料には0.001~0.5重量%、好ましくは0.002~0.4重量%、最も好ましくは0.003~0.3重量%の塩化物イオンを更に含有させることができる。塩化物イオン成分は塩化ナトリウム又は塩化カリウムのような塩の形態で配合できる。カルシウム及びマグネシウム、亜鉛、鉄のような他の微量イオンも配合してよい。これらのイオンも塩として配合してよい。飲料中に存在するイオンの合計量には、添加されたイオン量と共に、飲料中に天然で存在するイオン量を含む。例えば、塩化ナトリウムが添加された場合、その量のナトリウムイオン及びその量の塩化物イオンも、それに応じて各イオンの合計量に含まれる。

ここで、ナトリウムイオンやカリウムイオン濃度が低すぎると、飲む場面によっては味的に物足りなく感じ、効果的なミネラル補給ができなくて好ましくない。一方、多すぎると、塩類自体の味が強くなり長期間の飲用に好ましくない。

【0035】

本発明の容器詰飲料には、味を改善する目的で、甘味料が用いられる。甘味料としては人工甘味料類、炭水化物類、グリセロール類（例えばグリセリン）が用いられる。これらの甘味料は、本発明容器詰飲料中に0.0001~20重量%、更に0.001~15重量%、最も好ましくは0.001~10重量%含有する。前記下限未満であると、甘みがほとんどなく、酸味、塩味とのバランスがとれない。一方上限を超えると、甘すぎて喉にひっかかる感覚が強く、喉越しが低下する。

本発明の容器詰飲料における甘味料としては、人工甘味料を使用することが好ましい。

本発明で利用できる人工甘味料の例にはサッカリン及びサッカリンナトリウム、アスパルテム、アセサルフェーム-K、スクラロース、ネオテム等の高甘度甘味料、ソルビトール、エリスリトール、キシリトール等の糖アルコールを使用できる。商品としては、アスパルテムからなるスリムアップシュガー、エリスリトールを含んだラカントS、エリスリトールとアスパルテムからなるパルスweet等を使用できる。

【0036】

目的とする容器詰飲料がエネルギー補給を兼ね備える場合には、炭水化物類の甘味料を使用の方が好ましい。

本発明で利用できる炭水化物類甘味料としては可溶性炭水化物が用いられる。可溶性炭水化物には、甘味料とエネルギー源との役割がある。本発明飲料に使用する炭水化物を選択するにあたっては、十分な胃排出及び腸吸収速度を考慮することが必要である。

【0037】

炭水化物はグルコース及びフルクトースの混合物でも、あるいは消化管で加水分解するか又はグルコース及びフルクトースを形成する炭水化物であってもよい。本明細書で用いられる「炭水化物」という用語は、単糖、二糖、オリゴ糖、複合多糖及びそれらの混合物を含む。

【0038】

ここで使用できる単糖にはテトロース、ペントース、ヘキソース及びケトヘキソースがある。ヘキソースの例は、ブドウ糖として知られるグルコースのようなアルドヘキソースである。本発明の容器詰飲料中のグルコース量は、好ましくは0.0001~20重量%である。更に好ましくは0.001~15重量%、最も好ましくは0.001~10重量%である。果糖として知られるフルクトースはケトヘキソースである。本発明容器詰飲料中のフルクトースの量は0.0001~20重量%、更に0.001~15重量%、特に0.001~10重量%である。

本発明飲料中においては、人工甘味料単独系、人工甘味料とグルコース系化合物、もしくは人工甘味料とフルクトース系化合物の組み合わせが好ましい。

【0039】

本発明で使用できる炭水化物類甘味料としては可溶性炭水化物が用いられるが、オリゴ糖としては、これら2種の単糖を体内で生成する炭水化物（即ち、スクロース、マルトデキストリン、コーンシロップ、高フルクトースコーンシロップ）が挙げられる。このオリゴ糖の重要なタイプは二糖である。二糖の例は、ショ糖又はテンサイ糖として知られるスクロースである。本発明容器詰飲料中のスクロースの量は、0.001~20重量%、更に0.001~15重量%、特に0.001~10重量%である。

【0040】

本発明の容器詰飲料のpHは2~6、好ましくは2~5、より好ましくは3~4.5が非重合体カテキン類の安定性上良い。pHが低すぎると飲料の酸味、刺激臭が強くなる。また、pHが高すぎると風味の調和が取れなくなり、嗜好性が低下するので好ましくない。

【0041】

本発明の容器詰飲料は、苦渋味抑制剤を配合すると飲用しやすくなり好ましい。用いる苦渋味抑制剤は特に限定はないが、サイクロデキストリンが好ましい。サイクロデキストリンとしては、 α -、 β -、 γ -サイクロデキストリン及び分岐 α -、 β -、 γ -サイクロデキストリンが使用できる。サイクロデキストリンは飲料中に0.005~0.5重量%、好ましくは0.01~0.3重量%含有するのがよい。本発明の容器詰飲料には、酸化防止剤、香料、各種エステル類、有機酸類、有機酸塩類、無機酸類、無機酸塩類、無機塩類、色素類、乳化剤、保存料、調味料、甘味料、酸味料、ガム、乳化剤、油、ビタミン、アミノ酸、果汁エキス類、野菜エキス類、花蜜エキス類、pH調整剤、品質安定剤等の添加剤を単独、あるいは併用して配合できる。

【0042】

本発明の容器詰飲料に使用される容器は、一般の飲料と同様にポリエチレンテレフタレート（PETボトル）、金属缶、金属箔やプラスチックフィルムと複合された紙容器、瓶等の通常の形態で提供することができる。ここでいう容器詰飲料とは希釈せずに飲用できるものをいう。

【0043】

本発明の容器詰飲料は、例えば、金属缶のように容器に充填後、加熱殺菌できる場合にあっては食品衛生法に定められた殺菌条件で製造されるが、PETボトル、紙容器のようにレトルト殺菌できないものについては、あらかじめ上記と同等の殺菌条件、例えばプレート式熱交換器等で高温短時間殺菌後、一定の温度迄冷却して容器に充填する等の方法が採用される。また無菌下で、充填された容器に別の成分を配合して充填してもよい。更に、酸性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを中性に戻すことや、中性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを酸性に戻す等の操作も可能である。

【実施例】

【0044】

カテキン類の測定

精製緑茶抽出物を蒸留水で希釈し、フィルター(0.8 μ m)でろ過後、島津製作所社製、高速液体クロマトグラフ(型式SCL-10AVP)を用い、オクタデシル基導入液体クロマトグラフ用パックドカラム L-カラムTM ODS(4.6mm ϕ ×250mm:財団法人 化学物質評価研究機構製)を装着し、カラム温度35℃で、A液及びB液を用いたグラジエント法を用いて行った。移動相A液は酢酸を0.1mol/L含有の蒸留水溶液、B液は酢酸を0.1mol/L含有のアセトニトリル溶液とし、試料注入量は20 μ L、UV検出器波長は280nmの条件で行った。

【0045】

カフェインの測定

(分析機器)

HPLC(日立製作所社製)装置を使用。

プロッター:D-2500, デイテイクター:L-4200

ポンプ:L-7100, オートサンプラー:L-7200

カラム:Inertsil ODS-2、内径2.1mm×長さ250mm

(分析条件)

サンプル注入量:10 μ L、流量:1.0mL/min

紫外線吸光度計検出波長:280nm

溶離液A:0.1mol/L酢酸水溶液、溶離液B:0.1mol/L酢酸アセトニ

トリル溶液

濃度勾配条件(体積%)

時間	溶離液A	溶離液B
0分	97%	3%
5分	97%	3%
37分	80%	20%
43分	80%	20%
43.5分	0%	100%
48.5分	0%	100%
49分	97%	3%
62分	97%	3%

(カフェインのリテンションタイム)

カフェイン:27.2分

ここで求めたエリア%から標準物質により重量%を求めた。

【0046】

タンパク質及び遊離アミノ酸の測

(タンパク質+遊離アミノ酸量)の計算式:

(精製緑茶抽出物中の全窒素-カフェイン態窒素)×換算係数

・全窒素の定量法:

栄養表示基準(平成8年5月厚生省告示第146号)における栄養成分等の分析方法等(栄養表示基準別表第1の第3欄に掲げる方法)に準ずる窒素定量換算法(マクロ改良ケルダール法)により求める。

・カフェイン態窒素:

段落(0045)記載の測定法により求めたカフェイン量を、カフェイン分子量(Mw=194)中の窒素分子量(Mw=54)に換算することにより求める。

・換算係数:

栄養表示基準(平成8年5月厚生省告示第146号)における栄養成分等の分析方法等(栄養表示基準別表第1の第3欄に掲げる方法)に準ずる換算係数(6.25)を用いる

【0047】

実施例 1 精製緑茶抽出物 A

酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 100 g を常温、400 r/min 攪拌条件下の 92.4 重量% エタノール水溶液 800 g 中に分散させ、約 10 分間攪拌を行い、緑茶抽出物 (ポリフェノン HG、東京フードテクノ社製) 200 g を投入し、室温のまま約 3 時間の攪拌を続けた。

その後、2 号ろ紙でろ過し、活性炭クラレコール GLC (クラレケミカル社製) 20 g と接触させ、続けて 0.2 μ m メンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水 200 g をろ過液に添加して、40℃、0.0272 kg/cm² でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

酸性白土/非重合体カテキン類重量比率 1.5

処理後: 非重合体カテキン類/ (遊離アミノ酸+タンパク質) 17

【0048】

実施例 2 精製緑茶抽出物 B

酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 100 g、クエン酸 6.0 g を常温、400 r/min 攪拌条件下の 92.4 重量% エタノール水溶液 800 g 中に分散させ、約 10 分間攪拌を行い、緑茶抽出物 (ポリフェノン HG、東京フードテクノ社製) 200 g を投入し、室温のまま約 3 時間の攪拌を続けた。

その後、2 号ろ紙でろ過し、活性炭クラレコール GLC (クラレケミカル社製) 20 g と接触させ、続けて 0.2 μ m メンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水 200 g をろ過液に添加して、40℃、0.0272 kg/cm² でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

クエン酸/非重合体カテキン類重量比率 0.08

処理後: 非重合体カテキン類/ (遊離アミノ酸+タンパク質) 18

【0049】

実施例 3 精製緑茶抽出物 C

酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 100 g を常温、400 r/min 攪拌条件下の 92.4 重量% エタノール水溶液 800 g 中に分散させ、約 10 分間攪拌を行い、緑茶抽出物 (ポリフェノン HG、東京フードテクノ社製) 200 g を投入し、室温のまま約 3 時間の攪拌を続け、40℃ に昇温した後約 3 時間の攪拌を続けた。

その後、40℃ のまま 2 号ろ紙でろ過した後、室温にて活性炭クラレコール GLC (クラレケミカル社製) 20 g と接触させ、続けて 0.2 μ m メンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水 200 g をろ過液に添加して、40℃、0.0272 kg/cm² でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

処理後: 非重合体カテキン類/ (遊離アミノ酸+タンパク質) 20

【0050】

実施例 4 精製緑茶抽出物 D

酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 100 g、クエン酸 6.0 g を常温、400 r/min 攪拌条件下の 92.4 重量% エタノール水溶液 800 g 中に分散させ、約 10 分間攪拌を行い、緑茶抽出物 (ポリフェノン HG、東京フードテクノ社製) 200 g を投入し、室温のまま約 3 時間の攪拌を続け、40℃ に昇温した後約 3 時間の攪拌を続けた。

その後、40℃ のまま 2 号ろ紙でろ過した後、室温にて活性炭クラレコール GLC (クラレケミカル社製) 20 g と接触させ、続けて 0.2 μ m メンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水 200 g をろ過液に添加して、40℃、0.0272 kg/cm² でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

処理後: 非重合体カテキン類/ (遊離アミノ酸+タンパク質) 19

【0051】

比較例 1

緑茶抽出物 (ポリフェノン HG、東京フードテクノ社製) 200 g を常温、250 r/min 攪拌条件下の水 900 g 中に分散させ、活性炭クラレコール GLC (クラレケミカル社製) 20 g と接触させ、続けて 0.2 μ m メンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水 200 g をろ過液に添加して、40℃、0.0272 kg/cm² でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

ル社製) 40 g と酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 200 g を投入後、約 20 分間攪拌を続けた。その後、室温のまま約 30 分間の攪拌処理を続けた。その後、2 号ろ紙でろ過したのちに 0.2 μ m メンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後に実施例 1 と同等の非重合体カテキン類濃度になるまで、乾燥機で徐々に水分を蒸発させ製品を得た。

【0052】

実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 の製造条件及び得られた緑茶抽出物の分析結果を、表 1 に示す。

【0053】

【表 1】

	本発明				比較
	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1
固体の緑茶抽出物 (g)	200	200	200	200	200
エタノール (g)	739.2	739.2	739.2	739.2	0
水 (g)	60.8	60.8	60.8	60.8	900
活性炭 (g)	20	20	20	20	40
酸性白土 (g)	100	100	100	100	200
有機酸 (g)	0	5.6	0	5.6	0
有機溶媒/水 (重量比)	92/8	92/8	92/8	92/8	0/100
溶解温度 (°C)	25	25	25→40	25→40	25
混合液の pH	5.8	4.6	4.8	4.7	6.5
処理後の非重合体カテキン類 (重量%)					
GC	5.55	4.95	6.04	5.92	7.42
EGC	26.03	23.81	28.33	28.45	34.72
C	2.84	2.62	3.09	3.13	2.02
EC	8.49	7.45	9.24	8.90	8.24
EGCg	35.47	32.61	38.60	38.97	35.86
GCg	1.14	0.96	1.24	1.14	1.47
ECg	11.50	10.43	12.51	12.47	9.61
Cg	0.88	0.86	0.96	1.03	0.66
処理後の非重合体カテキン類/カフェイン (重量比)	29.6	30.4	32.2	36.4	42.6
処理後の非重合体カテキン類中におけるガレート体率 (重量%)	53.3	53.5	53.3	53.6	47.6
処理後の非重合体カテキン類中におけるガロ体率 (重量%)	74.3	74.8	74.2	74.5	79.5
処理後の固形分中における非重合体カテキン類濃度 (重量%)	68	62	63	61	34
抽出後の液中における非重合体カテキン類濃度 (重量%)	91	95	94	98	100
非重合体カテキン類の収率 (重量%)	68	70	74	75	76
精製品の評価	カフェインが低減され、色相もよく、目視による安定性良好	カフェインが低減され、色相もよく、目視による安定性良好	カフェインが低減され、色相もよく、目視による安定性良好	カフェインが低減され、色相もややよく、目視による安定性良好	色相悪化し、沈殿物発生

【0054】

※収率 精製緑茶抽出物中の非重合体カテキン類量の原料とした緑茶抽出物中の非重合体カテキン類量に対する比率 (重量%)

※ポリフェノンHG製剤の非重合体カテキン類組成

GC (ガロカテキン) 6.39 重量%、EGC (エピガロカテキン) 29.42 重量%、C (カテキン) 2.16 重量%、EC (エピカテキン) 10.3 重量%、EGCg (エピガロカテキンガレート) 37.13 重量%、GCg (ガロカテキンガレート) 1.93

重量%、ECg (エピカテキンガレート) 11.89重量%、Cg (カテキンガレート) 0.79重量%、ガレート体率51.73重量%、ガロ体率74.88重量%。

【0055】

表1に示すように有機溶媒の非常に高い水溶液を使用しつつ、酸性白土を使用し、特定のpH範囲で接触処理することにより、非重合体カテキン類のガレート体率やガロ体率を変化させることなく、カフェインを低減し、色相よく安定性の良好な精製緑茶抽出物を製造できる。

【0056】

実施例5

表1の精製緑茶抽出物を配合し、イオン交換水でメスアップし調合液を調製した。食品衛生法に基づく殺菌工程、ならびにホットパック充填を行い、容器詰飲料とした。

【0057】

飲用直後のキレの評価は5名の男性モニターを用い、飲料350mLを単回摂取してもらい、以下の基準で評価点をつけた。

【0058】

- 5: キレが非常に良い
- 4: キレが良い
- 3: キレがやや良い
- 2: キレがやや悪い
- 1: キレが悪い

【0059】

【表2】

配合	本発明飲料				比較
	1	2	3	4	2
緑茶抽出物A	1.00				
緑茶抽出物B		1.00			
緑茶抽出物C			1.00		
緑茶抽出物D				1.00	
比較例2抽出物					1.00
酸化防止剤	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
酸味料	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
甘味料	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00
果汁	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
イオン交換水	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス
総量	100	100	100	100	100
飲料pH	3.5	3.4	3.5	3.5	3.6
非重合体カテキン類(重量%)	0.22	0.22	0.22	0.22	0.22
非重合体カテキン類/カフェイン	29.6	30.4	32.2	36.4	42.6
飲料直後のキレ	4	3	4	3	1

【0060】

表2の結果から明らかなように、本発明により緑茶抽出物を処理することにより、カテキン類組成を維持したまま、カフェインを選択的に除去した本発明品を使用することにより、飲用直後のキレが際立って良くなった容器詰飲料を得ることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 緑茶抽出物中の非重合体カテキン類組成を著しく変化させることなく、非重合体カテキン類を効率よく抽出する方法の提供。

【解決手段】 有機溶媒と水の混合重量比が 91/9 ~ 97/3 の混合溶液に、酸性白土又は活性白土を分散させた分散液と、緑茶抽出物とを接触させる精製緑茶抽出物の製造方法であって、該分散液と緑茶抽出物を接触させたときの pH を 4 ~ 6 とする精製緑茶抽出物の製造方法。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2004-316760
受付番号	50401857917
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成16年11月 1日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成16年10月29日

特願 2004-316760

出願人履歴情報

識別番号

[000000918]

1. 変更年月日

1990年 8月24日

[変更理由]

新規登録

住所

東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号

氏名

花王株式会社

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/017875

International filing date: 01 December 2004 (01.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-316760
Filing date: 29 October 2004 (29.10.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 04 February 2005 (04.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.